

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
19. Februar 2004 (19.02.2004)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 2004/014529 A2(51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: B01D 63/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE2003/002568

(22) Internationales Anmeldedatum:  
31. Juli 2003 (31.07.2003)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:  
102 35 419.7 2. August 2002 (02.08.2002) DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): DAIMLERCHRYSLER AG [DE/DE]; Eplestr. 225, 70567 Stuttgart (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): POSCHMANN, Thomas [DE/DE]; Nagelstr. 36, 89073 Ulm (DE).

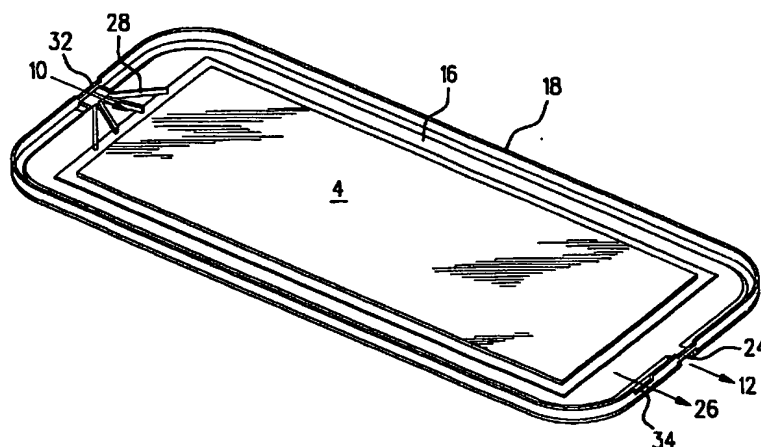
(81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

(84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: MEMBRANE MODULE FOR THE SEPARATION OF HYDROGEN AND METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF

(54) Bezeichnung: MEMBRANMODUL ZUR WASSERSTOFFABTRENNUNG UND VERFAHREN ZU DESSEN HERSTELLUNG



(57) Abstract: The invention relates to a membrane module for the separation of hydrogen and a method for the production thereof. The membrane module is configured for parallel flows and contains a plurality of planar membrane cells which respectively comprise two hydrogen-selective planar membranes (4) which are respectively surrounded by a flat membrane frame (16), an air-permeable distancing layer which is arranged between the membranes for removal of the permeate gas and a supply frame (18) surrounding a supply area for the reformat gas (10), whereby all membrane frames and supply frames have the same outer dimensions and form a stack with planar side surfaces. According to the invention, the two membrane frames (16) of each membrane cell (2) have protruding edges directed towards each other, enabling them to enter into contact with each other, the only exception being at least one opening towards a side surface of the stack. The supply frame (18) is embodied in such a way that, it is disposed, with the exception of the openings (32,34) towards the side surfaces of the stack, in a closely adjacent manner to the edges of the membrane frame (16) of two neighbouring membrane cells (2). The outsides of all membrane frames (16) and supply frames (18), with the exception of the openings (24, 32, 34), are welded or soldered to each other in a gas-tight manner.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

**Veröffentlicht:**

— ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

---

**(57) Zusammenfassung:** Die Erfindung betrifft ein Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung und ein Verfahren zu dessen Herstellung. Das Membranmodul ist für parallele Anströmung ausgelegt und enthält eine Vielzahl von ebenen Membranzellen, die jeweils zwei wasserstoffselektive ebene Membranen (4), die jeweils von einem flächigen Membranrahmen (16) umgeben sind, eine zwischen den Membranen angeordnete luftdurchlässige Abstandshalteschicht zur Ableitung von Permeatgas und einen Zufuhrrahmen (18) enthalten, der einen Zufuhrraum für Reformatgas (10) umgibt, wobei alle Membranrahmen und Zufuhrrahmen gleiche äußere Abmessungen haben und einen Stapel mit ebenen Seitenflächen bilden. Gemäß der Erfindung haben die zwei Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) aufeinander zu gerichtete erhabene Ränder, mit denen sie sich mit Ausnahme mindestens einer Öffnung nach einer Seitenfläche des Stapels hin berühren, und ist der Zufuhrrahmen (18) so ausgebildet, dass er mit Ausnahme von Öffnungen (32, 34) nach Seitenflächen des Stapels hin eng an den Rändern der Membranrahmen (16) zweier benachbarter Membranzellen (2) anliegt. Die Außenseiten aller Membranrahmen (16) und Zufuhrrahmen (18) sind unter Aussparung der Öffnungen (24, 32, 34) gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet.

Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung  
und Verfahren zu dessen Herstellung

5 Die Erfindung betrifft ein Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung und ein Verfahren zu dessen Herstellung.

Brennstoffzellensysteme, insbesondere solche für mobile Anwendungen, können durch Reformierung von Kohlenwasserstoffen wie zum Beispiel Methanol, Benzin oder Diesel mit Wasserstoff  
10 versorgt werden. Das in einem Reformierungsprozess entstandene Produktgas enthält neben Wasserstoff auch Kohlenmonoxid, Kohlendioxid und Wasserdampf. Insbesondere das Kohlenmonoxid muss für die Anwendung in der Brennstoffzelle entfernt werden,  
15 da dieses Gas als Katalysatorgift wirkt und zu einer Leistungseinbuße in der Brennstoffzelle führt.

Für die Wasserstoffabtrennung werden seit langem Membranen eingesetzt, die aus verschiedenen Materialien wie zum  
20 Beispiel Keramik, Glas, Polymer oder Metall bestehen können. Metallmembranen zeichnen sich durch eine hohe Selektivität für Wasserstoff und eine hohe Temperaturstabilität aus, haben aber vergleichsweise niedrige Permeationsraten.

25 Um eine gewünschte Permeationsrate zu erreichen, verwendet man eine Vielzahl von Membranzellen mit jeweils einer wasserstoffselektiven Membran, bei denen die einzelnen Membranen entweder nacheinander (seriell) oder nebeneinander (parallel) vom wasserstoffhaltigen Reformatgas angeströmt werden. Die

Membranzellen werden aufeinander gestapelt, um ein kompaktes Membranmodul zu bilden.

Membranmodule mit serieller Anströmung sind zum Beispiel in der US 5 498 278 und der US 5 645 626 beschrieben.

5

Ein Membranmodul mit paralleler Anströmung, gemäß den Oberbegriffen der Patentansprüche 1 und 14, ist aus der WO 01/70376 bekannt. Jede Membranzelle des Membranmoduls enthält mehrere aufeinander gestapelte ovale oder ungefähr rechteckige Rahmen als Träger für wasserstoffselektive ebene Membranen und für eine luftdurchlässige Abstandshalteschicht zur Ableitung von Permeatgas, und außerdem zwei Zufuhrrahmen, die Zufuhrräume für Reformatgas umgeben. Alle Rahmen haben gleiche äußere Abmessungen und bilden einen kompakten Stapel mit glatten Außenflächen. Die Rahmen enthalten miteinander fluchtende Löcher, die Kanäle zur gemeinsamen Zu- bzw. Ableitung der Prozessgase bilden, nämlich erstens zur Zuleitung von wasserstoffhaltigem Reformatgas aus einem vorgeschalteten Reformierungsprozess, zweitens zur Ableitung des Raffinatgases, das heißt des wasserstoffabgereicherten Reformatgases, und drittens zur Ableitung des Permeatgases, das heißt des durch die Membranen diffundierten Wasserstoffs.

So ein Membranmodul mit paralleler Anströmung ist sehr viel einfacher aufgebaut als ein Membranmodul mit serieller Anströmung, da keine Strukturen notwendig sind, die eine Umlenkung des Permeatgases von Zelle zu Zelle bewirken, wie bei serieller Gasführung erforderlich.

Dennoch ist der Fertigungsaufwand für das aus der WO 01/70376 bekannte Membranmodul beträchtlich, da die Umlenkung der Gase innerhalb der verschiedenen Rahmen erfolgt. Die Löcher in den Rahmen müssen mit hoher Genauigkeit hergestellt werden, da irgendwelche vorstehenden oder rückspringenden Rahmenteile oder Grate den Gasfluss behindern und die Herstellung von Gasdichtigkeit erschweren können. Noch schwerwiegender ist, dass fertigungsbedingte Ungenauigkeiten unterschiedliche

Teilströme durch die einzelnen Membranzellen zur Folge haben können, wodurch die Permeationsrate verschlechtert wird, wie später noch erläutert wird. Schließlich müssen die Rahmen auf ganzer Fläche gasdicht miteinander verbunden werden, um die

5 Kanäle und die Separationsräume zuverlässig leckfrei voneinander zu trennen.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, ein Membranmodul zu schaffen, das mit möglichst geringem Aufwand und ohne Verwen-

10 dung von Dichtungen hergestellt werden kann, wobei keine Gefahr von Leckagen der Gasströme besteht.

Diese Aufgabe wird bei einem gattungsgemäßen Membranmodul erfindungsgemäß dadurch gelöst, dass die zwei Membranrahmen

15 jeder Membranzelle aufeinander zu gerichtete erhabene Ränder haben, mit denen sie sich mit Ausnahme mindestens einer Öffnung nach einer Seitenfläche des Stapels hin berühren, dass der Zufuhrrahmen so ausgebildet ist, dass er mit Ausnahme von Öffnungen nach Seitenflächen des Stapels hin eng an den

20 Rändern der Membranrahmen zweier benachbarter Membranzellen anliegt, und dass die Außenseiten aller Membranrahmen und Zufuhrrahmen unter Aussparung der Öffnungen gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet sind.

25 Das Verfahren zur Herstellung des Membranmoduls ist in Anspruch 14 angegeben.

Indem sich die zwei Membranrahmen jeder Membranzelle an den erhabenen Rändern berühren, entfällt der sonst notwendige

30 zusätzliche Rahmen für die luftdurchlässige Abstandshaltschicht zwischen den Membranen der Membranzelle, durch die das Permeatgas abgeleitet wird. Die Dickendifferenz wird durch einen etwas höheren Zufuhrrahmen ausgeglichen, und aufgrund der größeren Höhe des Zufuhrrahmens können leicht

35 Strukturen zur Formanpassung an die Membranrahmen sowie Öffnungen zur seitlichen Zu- und Ableitung der Reformat- und Raffinatgase darin ausgebildet werden.

Die erhabenen Ränder in den Membranrahmen haben eine gewisse Breite, damit sie flächig aufeinander liegen, und die Zufuhr-  
rahmen sind am Rand schmaler als die erhabenen Ränder in den  
Membranrahmen und mit passenden Auskehlungen versehen, dass  
5 sie sich von hinten genau in die erhabenen Ränder einfügen.

Die Membranrahmen können einfach durch Stanzen beziehungs-  
weise Prägen von Flachmaterial wie zum Beispiel Blech  
hergestellt werden, und die Zufuhrrahmen können spanend oder  
10 spanlos geformt werden.

Nachdem alle Rahmen eines Stapels aufeinander gelegt worden  
sind, wofür keine übermäßige Genauigkeit nötig ist, wird der  
Stapel einfach durch Verschweißen oder Verlöten der Außen-  
15 seiten verbunden und gasdicht gemacht, wobei die Öffnungen  
für Zu- und Ableitung der Prozessgase offen gehalten werden.  
Zusammengehörende Öffnungen liegen dann übereinander und kön-  
nen auf einfache Weise mit einem passenden Zu- oder Ablei-  
tungskanal verbunden werden. Die Herstellung ist besonders  
20 einfach, wenn alle Rahmen aus Metall bestehen, da sie dann  
sowohl untereinander als auch mit den Zu- und Ableitungen  
durch Schweißen verbunden werden können.

Im gleichen Arbeitsgang wie zur Herstellung der erhabenen  
25 Ränder können außerdem Strukturen in die Membranrahmen ge-  
prägt werden, die das Reformatgas gleichmäßig auf den Zufuhr-  
raum verteilen, vorzugsweise Stege, die auf die Reformatgas-  
Öffnung im Zufuhrrahmen ausgerichtet sind und die sich insbe-  
sondere in einer radialen Verteilung von der Reformatgas-  
30 Öffnung in Richtung auf eine Membrankante erstrecken.

Ein wesentlicher Vorteil des erfindungsgemäßen Membranmoduls  
ist, dass man mit nur wenigen verschiedenen Bauteilen  
auskommt, die einfach gestanzt bzw. geprägt werden können.  
15 Querschnitte, die den Strömungswiderstand und damit den Gas-  
fluss bestimmen, ergeben sich dann durch Prägen, welches

leicht mit hoher Genauigkeit erfolgen kann, so dass die einzelnen Teilströme durch die Membranzellen praktisch gleich sind und somit ein hoher Gesamtwirkungsgrad erreicht wird. Das gesamte Membranmodul kann geschweißt werden, so dass  
5 keine Leckströme von Kohlenmonoxid in das Permeatgas auftreten können, was durch Dichtungen nicht immer gewährleistet werden kann. Für die Zu- und Ableitung der Reformat-, Raffinat- und Permeatgase benötigt man jeweils nur ein zusätzliches Bauteil. Die Membranen können in rechteckiger Form ver-  
10 wendet werden, so dass der Membranverschnitt klein gehalten werden kann, und sie müssen nicht zur Permeatgasdurchführung gelocht werden. Durch die parallele Führung der Reformat- bzw. Raffinatgase sind keine Strukturen zur Gasumlenkung von Membranzelle zu Membranzelle nötig, wie sie bei serieller  
15 Strömungsführung erforderlich sind, so dass die Abmessungen des Membranmoduls klein gehalten werden können.

Weitere Merkmale und Vorteile der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprüchen und aus der folgenden Beschreibung eines  
20 Ausführungsbeispiels anhand der Zeichnung. Darin zeigen:

Fig. 1 eine Prinzipskizze eines Membranmoduls mit einer Vielzahl von parallel angeströmten Membranen,

25 Fig. 2 eine Perspektivansicht eines Membranrahmens,

Fig. 3 eine Perspektivansicht eines Zufuhrrahmens,

Fig. 4 eine Perspektivansicht einer Membranzelle, und  
30

Fig. 5 eine perspektivische Explosionsansicht eines Teils eines Membranmoduls einschließlich einer von zwei Endplatten.

Wie in Fig. 1 gezeigt, besteht ein Membranmodul aus einer  
35 Vielzahl von übereinander angeordneten ebenen Membranzellen 2, die jeweils zwei wasserstoffselektive ebene Membranen 4

enthalten, zwischen denen eine luftdurchlässige Abstandshalteschicht 6 liegt.

Die Membranen 4 sind bevorzugt Metallfolien aus Palladium, Palladiumlegierungen oder refraktären Metallen wie Vanadium, Niob und Tantal und deren Legierungen. Sie gewährleisten eine nahezu unendliche Selektivität für Wasserstoff und somit eine zur Versorgung von Brennstoffzellen ausreichende Reinheit des Permeatgases. Alternativ können Verbundmembranen verwendet werden, zum Beispiel wasserstoffselektive Membranen auf einer porösen Trägerstruktur, die zum Beispiel aus Keramik oder porösem Edelstahl bestehen kann.

Je zwei Membranzellen 2 sind durch Zufuhr Räume 8 voneinander getrennt, in die von einer Seite des Stapels Membranzellen 2 her unter Druck stehendes wasserstoffhaltiges Reformatgas 10 eingespeist wird, das in einem vorgeschalteten Reformierungsprozess zum Beispiel aus Methanol, Benzin oder Diesel gewonnen wird.

Ein Teil des im Reformatgas 10 enthaltenen Wasserstoffs diffundiert durch die Membranen 4 in die luftdurchlässige Abstandshalteschicht 6, wenn das wasserstoffhaltige Reformatgas an den Membranen 4 entlang strömt. Das heißt, der Wasserstoffgehalt bzw. der Wasserstoff-Partialdruck vermindert sich, während das Gas an den Membranen 4 entlang strömt und als wasserstoffabgereichertes Raffinatgas 12 an der dem Reformatgas-Einlass entgegengesetzten Seite aus dem Stapel Membranzellen 2 austritt, wie in Fig. 1 mit Pfeilen angezeigt.

Das durch die Membranen 4 diffundierte Permeatgas ist hochreiner Wasserstoff, der in der Abstandshalteschicht 6 gesammelt und seitlich abgeleitet wird (in Fig. 1 nicht gezeigt).

Am oberen und unteren Ende des Stapels Membranzellen 2 befinden sich angrenzend an den letzten Zufuhr Raum 8 jeweils eine einzelne wasserstoffselektive Membran 4, eine luftdurchlässige



sige Abstandshalteschicht 6 und eine Endplatte 14 zur Abdichtung und zur Abstützung der letzten Schichten gegen den inneren Gasdruck des Membranmoduls. In Fig. 1 ist nur eine obere Endplatte 14 gezeigt.

5

Es hat sich gezeigt, dass die theoretisch maximal mögliche Permeationsrate nicht nur bei Membranmodulen mit serieller Anströmung erreicht wird, wie sie zum Beispiel in der US 5 498 278 und der US 5 645 626 beschrieben sind, sondern auch bei paralleler Anströmung wie in Fig. 1, sofern die mit Pfeilen angezeigten einzelnen Teilströme durch die Zufuhr-  
räume 8 gleich groß sind. Ferner wurde durch Simulation für zehn Teilströme festgestellt, dass selbst bei unterschiedlichen Teilströmen mit Abweichungen von 10 % voneinander die Permeationsrate unter praxisnahen Simulationsvoraussetzungen nur um maximal 3 % geringer ist als die theoretisch maximal mögliche Permeationsleistung. Andererseits kann bei geeigneter Ausführung der Querschnitte der Reformatgaszuleitung und der Raffinatgasableitung auch bei paralleler Anströmung gewährleistet werden, dass die Teilströme nahezu gleich sind (da der Strömungswiderstand in allen Strömungskanälen gleich groß ist).

Ein Membranmodul, bei dem nahezu gleiche Teilströme gewährleistet werden können und das dennoch mit wenig Aufwand hergestellt werden kann, wird nun anhand von Figuren 2 bis 5 im Detail beschrieben, wobei funktionsgleiche Bestandteile wie in Fig. 1 die gleichen Bezugszeichen haben.

Jede Membranzelle 2 enthält zwei flächige Membranrahmen 16, von denen einer in Fig. 2 gezeigt ist, die jeweils eine Membran 4 tragen. Weiterhin enthält jede Membranzelle 2 eine luftdurchlässige Abstandshalteschicht 6 zwischen den Membranen 4 sowie einen ringförmigen Zufuhrrahmen 18 (Fig. 3), der die gleichen äußeren Abmessungen wie die Membranrahmen 16 hat, wobei die äußeren Abmessungen hier durch ein Rechteck

mit gerundeten Ecken gebildet werden. Eine einzelne Membranzelle 2 im zusammengebauten Zustand ist in Fig. 4 gezeigt.

Wie in Fig. 2 gezeigt, ist jeder Membranrahmen 16 ein im wesentlichen ebenes, aus Edelstahlblech gestanztes Bauteil in Form eines Rechtecks mit gerundeten Ecken, das in der Mitte eine rechteckige Öffnung 20 für die Membran 4 hat und in das ein erhabener Rand 22 geprägt ist. Der erhabene Rand 22 hat eine gewisse Breite, auf der er eben ist, und erstreckt sich parallel zu der Ebene des inneren Bereichs des Membranrahmens 16 in einem kleinen Abstand davon versetzt, und zwar in Fig. 2 nach unten. In einem Abschnitt in der Mitte einer Schmalseite des Membranrahmens 16 ist das Blech nicht zu dem erhabenen Rand 22 geprägt, sondern erstreckt sich in der gleichen Ebene wie der innere Bereich des Membranrahmens 16, so dass der erhabene Rand 22 in diesem Abschnitt eine Auskehlung 24 enthält, durch die das Permeatgas 26 abgeleitet wird.

Auf der in Fig. 2 oben liegenden Oberfläche des Membranrahmens 16 stehen vier Stege 28 hervor, die sich ungefähr von der Mitte der Schmalseite des Membranrahmens 16, die der Schmalseite mit der Auskehlung 24 entgegengesetzt ist, sternförmig bis nahe an die rechteckige Öffnung 20 im Membranrahmen 16 erstrecken. Die Stege 28 bilden zusammen mit den Stegen 28 eines angrenzenden Membranrahmens 16 eine Verteilerstruktur, die das Reformatgas 10, das an dieser Seite des Membranrahmens 16 zugeführt wird, gleichmäßig auf die gesamte Breite der Membran 4 verteilt.

Die Stege 28 können im gleichen Arbeitsgang in das Blech des Membranrahmens 16 geprägt werden, in dem der erhabene Rand 22 geprägt wird, und das Prägen kann im gleichen Arbeitsgang wie das Ausstanzen des Membranrahmens 16 aus Blechmaterial erfolgen.

Der in Fig. 3 gezeigte Zufuhrrahmen 18 hat die Form eines ringförmig geschlossenen Streifens, der einen Zufuhrraum 8

(Fig. 1) für Reformatgas 10 nach den Seiten des Membranmoduls hin abschließt. Der ringförmige Zufuhrrahmen 18 ist etwas höher als ein Membranrahmen 16 insgesamt dick ist, schmaler als die erhabenen Ränder 22 in den Membranrahmen 16 und mit Auskehlungen 30 versehen, die den Auskehlungen 24 in den Membranrahmen 16 entsprechen, so dass er sich genau in die erhabenen Ränder 22 schmiegt, wenn er mit den Membranrahmen 16 zweier benachbarter Membranzellen 4 zusammengefügt wird. Der Zufuhrrahmen 18 kann zum Beispiel durch Prägen oder durch Fräsen, Biegen und Zusammenschweißen von Strangmaterial hergestellt werden.

Der Zustand, in dem ein Zufuhrrahmen 18 (in einer gegenüber der Lage von Fig. 3 um seine Längsachse gewendeten Lage) auf dem Membranrahmen 16 aufliegt, ist in Fig. 4 gezeigt. Auf die entgegengesetzte Seite des Membranrahmens 16 wird ein weiterer Membranrahmen 16 aufgelegt (in einer gegenüber der Lage von Fig. 2 um seine Längsachse gewendeten Lage). Wie man sieht, bilden die Auskehlungen 24 in den beiden Membranrahmen 16 einen Permeatauslasskanal zur Ableitung des Permeatgases 26.

Wie in Fig. 3 zu sehen ist, enthält der Zufuhrrahmen 18 außerdem Auskehlungen 32 und 34, die zusammen mit dem daran angrenzenden Membranrahmen 16 einen Einlasskanal für das Reformatgas 10 und einen Auslasskanal für das Raffinatgas 12 bilden, die in Fig. 4 zu erkennen sind.

Bevor die Membranrahmen 16 wie in Fig. 4 gezeigt zusammengefügt werden, werden die Membranen 4, die ein wenig größer als die rechteckige Öffnung 20 in jedem Membranrahmen 16 sind, gasdicht auf die Ränder der Öffnungen 20 geschweißt, vorzugsweise auf der Seite der Abstandshalteschicht 6, damit die Membran 4 direkt auf der Abstandshalteschicht 6 aufliegt. Die Membranen 4 können mittels verschiedener Schweißverfahren wie zum Beispiel Elektronenstrahlschweißen, Laserstrahlschweißen, Ultraschallschweißen oder Widerstands-Rollnahtschweißen oder

mittels Lötverfahren mit den jeweiligen Membranrahmen 16 verbunden werden. Zwischen je zwei Membranrahmen 16 wird eine Abstandshalteschicht 6 gelegt, die doppelt so dick ist, wie der erhabene Rand 22 des Membranrahmens 16 vom inneren Bereich des Membranrahmes 16 versetzt ist.

Die Abstandshalteschicht 6 besteht zum Beispiel aus einem Edelstahlnetz oder -vlies oder aus einer Mehrschichtstruktur und hat die Funktion, die Membranen 4 im Betrieb gegen die transmembrane Druckdifferenz zwischen Reformatgas 10 und Permeatgas 26 abzustützen und das durch die Membranen 4 diffundierte Permeatgas 26 parallel zur Membranoberfläche in Richtung auf den Permeatauslasskanal abzuleiten.

Zur Herstellung eines vollständigen Membranmoduls werden eine Vielzahl der in Fig. 4 gezeigten Membranzellen 2 aufeinander gestapelt. Am oberen und am unteren Ende des Stapels Membranzellen 2 werden jeweils ein einzelner Membranrahmen 16 mit eingebauter Membran 4 und eine Abstandshalteschicht 6 angeordnet. Zuletzt werden stabile Endplatten 14 aufgesetzt, die das Membranmodul gegen den inneren Gasdruck zusammenhalten.

Diese Art von Zellenabschlusskonstruktion, die schon anhand von Fig. 1 allgemein beschrieben wurde, ist in Fig. 5 detaillierter zu erkennen, die eine Explosionsansicht des obersten Teils des Membranmoduls einschließlich zweier Membranzellen 2 ist. Durch die Zellenabschlusskonstruktion mit einem einzelnen Membranrahmen 16 unter der Abstandshalteschicht 6 und der Endplatte 14 wird erreicht, dass Reformatgas-Teilströme, die den Endplatten 14 am nächsten durch das Membranmodul geführt werden, die gleiche Membranfläche überströmen wie alle anderen Teilströme.

An dem zusammengesetzten Stapel Membranzellen 2 werden die Membranrahmen 16, die Zufuhrrahmen 18 und die Endplatten 14 miteinander verschweißt, wodurch ein kompakter Stapel ent-

steht, der bis auf die Ein- und Auslasskanäle für das Reformatgas 10, das Raffinatgas 12 und das Permeatgas 26 gasdicht ist. Die Ein- und Auslasskanäle für das Reformatgas 10, das Raffinatgas 12 und das Permeatgas 26 liegen jeweils genau  
5 übereinander und bilden jeweils ein Rechteck, auf das ein passendes Zu- bzw. Ableitungsrohr oder dergleichen geschweißt wird.

Patentansprüche

5 1. Membranmodul zur Wasserstoffabtrennung, mit einer Vielzahl  
von ebenen Membranzellen, die jeweils zwei wasserstoffselek-  
tive ebene Membranen, die jeweils von einem flächigen Mem-  
branrahmen umgeben sind, eine zwischen den Membranen angeord-  
nete luftdurchlässige Abstandshalteschicht zur Ableitung von  
10 Permeatgas und einen Zufuhrrahmen enthalten, der einen  
Zufuhrraum für Reformatgas umgibt, wobei alle Membranrahmen  
und Zufuhrrahmen gleiche äußere Abmessungen haben und einen  
Stapel mit ebenen Seitenflächen bilden,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die zwei  
15 Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) aufeinander zu  
gerichtete erhabene Ränder (22) haben, mit denen sie sich mit  
Ausnahme mindestens einer Öffnung (24) nach einer Seiten-  
fläche des Stapels hin berühren, dass der Zufuhrrahmen (18)  
so ausgebildet ist, dass er mit Ausnahme von Öffnungen (32,  
20 34) nach Seitenflächen des Stapels hin eng an den Rändern der  
Membranrahmen (16) zweier benachbarter Membranzellen (2) an-  
liegt, und dass die Außenseiten aller Membranrahmen (16) und  
Zufuhrrahmen (18) unter Aussparung der Öffnungen (24, 32, 34)  
gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet sind.

25

2. Membranmodul nach Anspruch 1,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Mem-  
branrahmen (16) Stege (28) enthalten, die auf eine der Öff-  
nungen (32) im Zufuhrrahmen (18) ausgerichtet sind.

30

3. Membranmodul nach Anspruch 2,  
dadurch gekennzeichnet, dass sich die  
Stege (28) in einer radialen Verteilung von der Öffnung (32)  
im Zufuhrrahmen (18) in Richtung auf eine Membrankante er-  
5 strecken.

4. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Mem-  
branrahmen (16) aus einem flächigen Material bestehen, in das  
10 die erhabenen Ränder (22) und die mindestens eine Öffnung  
(24) und/oder die Stege (28) geprägt sind.

5. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Mem-  
15 branrahmen (16) aus geprägtem Blech bestehen.

6. Membranmodul nach Anspruch 5,  
dadurch gekennzeichnet, dass die zwei  
Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) an ihren erhabenen  
20 Rändern (22) miteinander verschweißt sind.

7. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Zufuhr-  
rahmen (18) ringförmig geschlossene Streifen sind, die  
25 schmaler als die erhabenen Ränder (22) der Membranrahmen (16)  
sind.

8. Membranmodul nach Anspruch 7,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Öffnun-  
30 gen (32, 34) in den Zufuhrrahmen (18) Auskehlungen in den  
Streifen sind.

9. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Zufuhr-  
35 rahmen (18) aus Metall bestehen.

10. Membranmodul nach Anspruch 6 und Anspruch 9,

d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die Membranrahmen (16) und die Zufuhrrahmen (18) miteinander verschweißt sind.

5 11. Membranmodul nach Anspruch 10,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass an die Seitenflächen des Stapels Kanäle geschweißt sind, die jeweils einander entsprechende Öffnungen (24) in den Membranrahmen (16) beziehungsweise Öffnungen (32, 34) in den Zufuhrrahmen  
10 (18) miteinander und mit der Außenseite verbinden.

12. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass auf dem obersten und dem untersten Zufuhrraum (8) des Stapels Mem-  
15 branzellen (2) jeweils in dieser Reihenfolge ein Membranrahmen (16) mit eingebauter Membran (4), eine Abstandshalteschicht (6) und eine Endplatte (14) angeordnet sind.

13. Membranmodul nach einem der vorhergehenden Ansprüche,  
20 d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die äußeren Abmessungen der Membranrahmen (16), der Zufuhrrahmen (18) beziehungsweise der Endplatten (14) durch ein Rechteck mit gerundeten Ecken gebildet werden.

25 14. Verfahren zur Herstellung eines Membranmoduls zur Wasserstoffabtrennung, bei dem eine Vielzahl von ebenen Membranzellen aufeinander gestapelt und miteinander verbunden werden, wobei jede Membranzelle aus zwei wasserstoffselektiven ebenen Membranen, die jeweils von einem flächigen Membranrahmen um-  
30 geben sind, einer zwischen den Membranen angeordneten luftdurchlässigen Abstandshalteschicht zur Ableitung von Permeatgas und einem Zufuhrrahmen aufgebaut wird, der einen Zufuhrraum für Reformatgas umgibt, wobei alle Membranrahmen und Zufuhrrahmen gleiche äußere Abmessungen haben und zu einen  
35 Stapel mit ebenen Seitenflächen zusammengesetzt werden,  
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die zwei Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) mit aufeinander zu



gerichteten erhabenen Rändern (22) ausgebildet und mit den Rändern aufeinander gelegt werden, wobei die erhabenen Ränder (22) so ausgebildet werden, dass mindestens eine Öffnung (24) nach einer Seitenfläche des Stapels hin frei bleibt, dass der Zufuhrrahmen (18) so ausgebildet wird, dass er mit Ausnahme von Öffnungen (32, 34) nach Seitenflächen des Stapels hin eng auf die Ränder (22) der Membranrahmen (16) zweier benachbarter Membranzellen (2) passt, und dass die Außenseiten aller Membranrahmen (16) und Zufuhrrahmen (18) unter Aussparung der Öffnungen (24, 32, 34) gasdicht miteinander verschweißt oder verlötet werden.

15. Verfahren nach Anspruch 14,  
da durch gekennzeichnet, dass die Membranrahmen (16) mit Stegen (28) versehen werden, die auf eine der Öffnungen (32) im Zufuhrrahmen (18) ausgerichtet sind.

16. Verfahren nach Anspruch 15,  
da durch gekennzeichnet, dass die Stege (28) so ausgebildet werden, dass sie sich in einer radialen Verteilung von der Öffnung (32) im Zufuhrrahmen (18) in Richtung auf eine Membrankante erstrecken.

17. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 16,  
da durch gekennzeichnet, dass die Membranrahmen (16) aus einem flächigen Material hergestellt werden, in das die erhabenen Ränder (22) und die mindestens eine Öffnung (24) und/oder die Stege (28) geprägt werden.

18. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 17,  
da durch gekennzeichnet, dass die Membranrahmen (16) aus Blech geprägt werden.

19. Verfahren nach Anspruch 18,  
da durch gekennzeichnet, dass die zwei Membranrahmen (16) jeder Membranzelle (2) an ihren erhabenen Rändern (22) miteinander verschweißt werden.

20. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 19,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Zufuhr-  
rahmen (18) ringförmig geschlossene Streifen sind, die  
5 schmaler als die erhabenen Ränder (22) der Membranrahmen (16)  
sind.

21. Verfahren nach Anspruch 20,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Öffnun-  
10 gen (32, 34) in den Zufuhrrahmen (18) durch Auskehlungen in  
den Streifen gebildet werden.

22. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 21,  
dadurch gekennzeichnet, dass die  
15 Zufuhrrahmen (18) aus Metall hergestellt werden.

23. Verfahren nach Anspruch 18 und Anspruch 22,  
dadurch gekennzeichnet, dass die Mem-  
branrahmen (16) und die Zufuhrrahmen (18) miteinander  
20 verschweißt werden.

24. Verfahren nach Anspruch 24,  
dadurch gekennzeichnet, dass an die  
Seitenflächen des Stapels Kanäle geschweißt werden, die  
25 jeweils einander entsprechende Öffnungen (24) in den Membran-  
rahmen (16) beziehungsweise Öffnungen (32, 34) in den Zufuhr-  
rahmen (18) miteinander und mit der Außenseite verbinden.

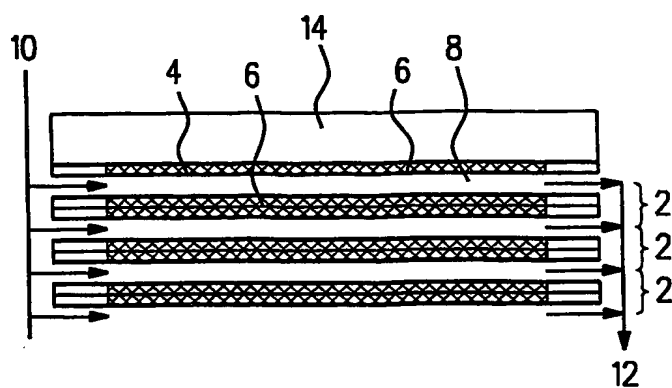
25. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 24,  
30 dadurch gekennzeichnet, dass auf dem  
obersten und dem untersten Zufuhrraum (8) des Stapels Mem-  
branzellen (2) jeweils in dieser Reihenfolge ein Membranrah-  
men (16) mit eingebauter Membran (4), eine Abstandshal-  
teschicht (6) und eine Endplatte (14) angeordnet werden.

35 26. Verfahren nach einem der Ansprüche 14 bis 25,

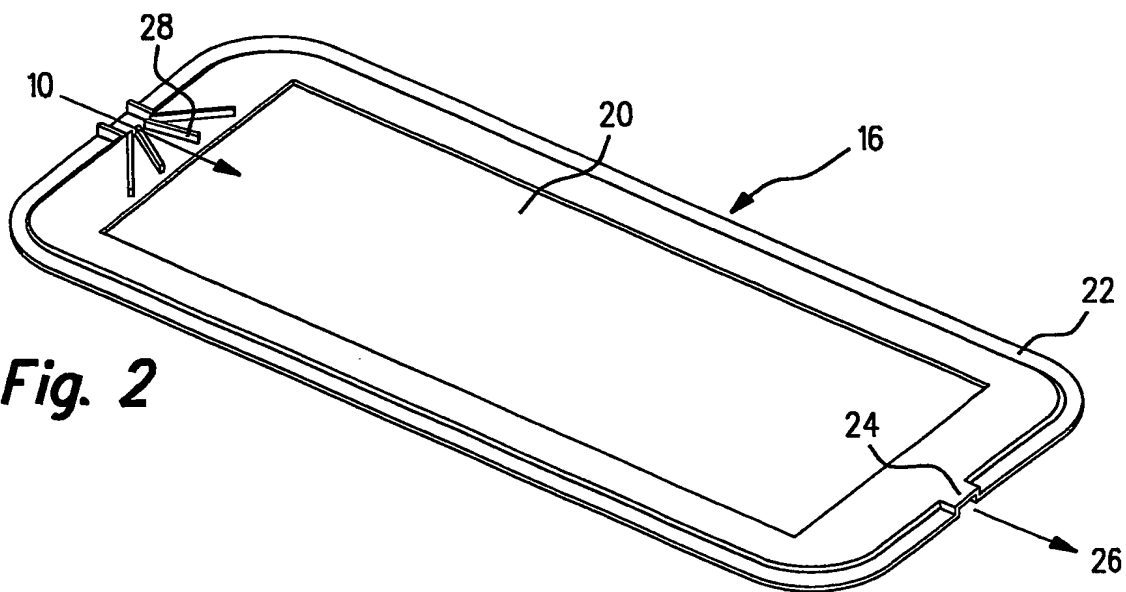
d a d u r c h g e k e n n z e i c h n e t, dass die äußeren Abmessungen der Membranrahmen (16), der Zufuhrrahmen (18) beziehungsweise der Endplatten (14) durch ein Rechteck mit gerundeten Ecken gebildet werden.

1 / 3

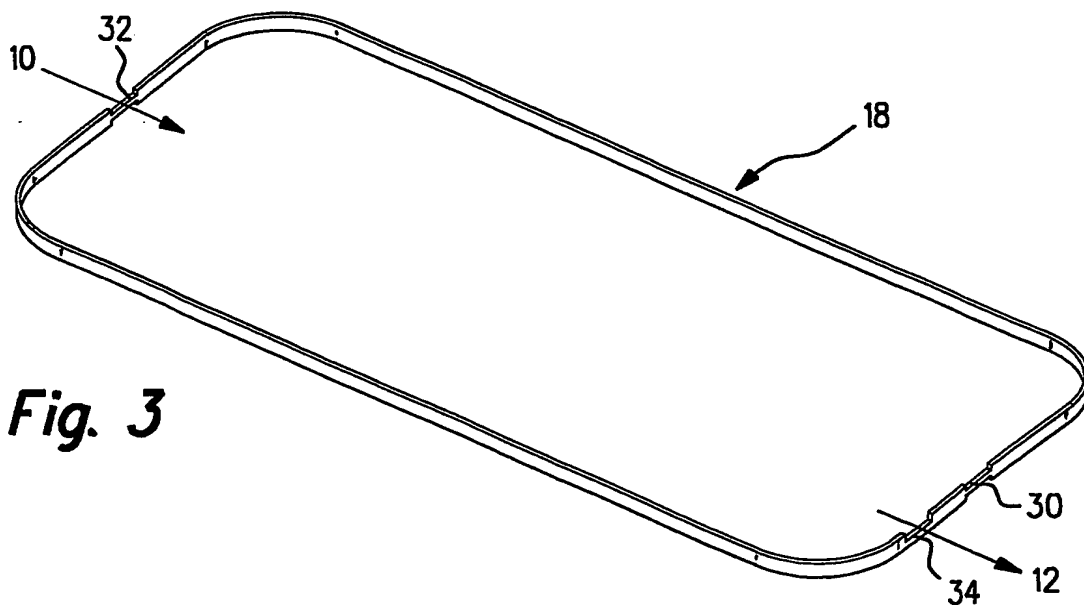
**Fig. 1**



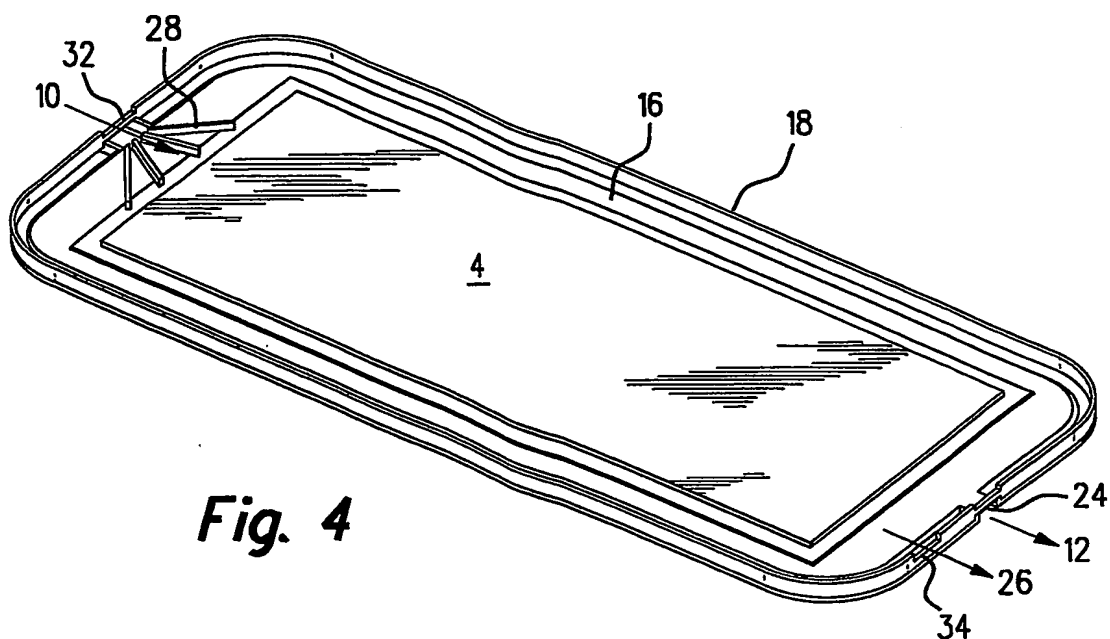
**Fig. 2**



**Fig. 3**

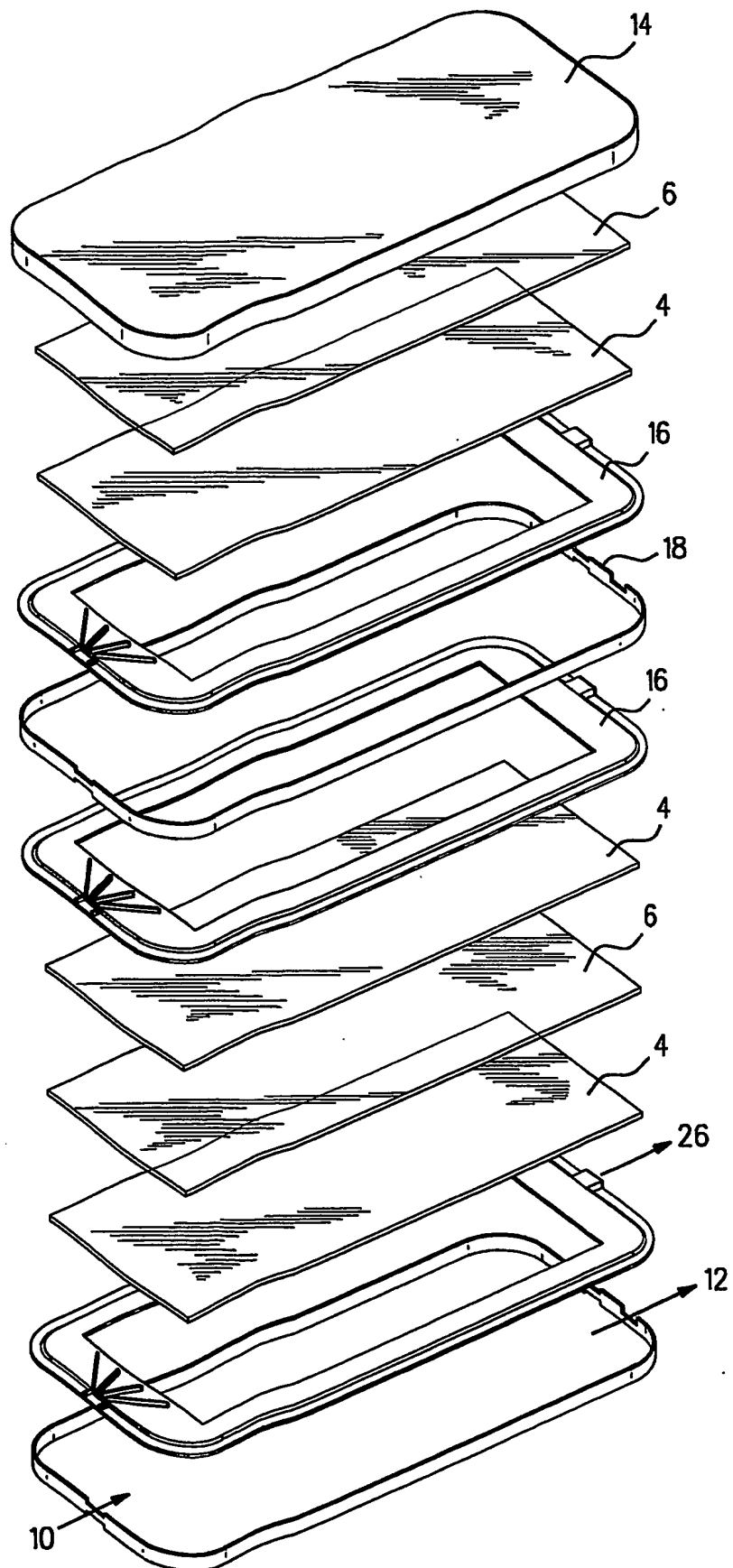


2 / 3

**Fig. 4**

3 / 3

**Fig. 5**



ERSATZBLATT (REGEL 26)

## A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 C01B3/50 B01D53/22 B01D71/02 B01D63/08

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C01B B01D H01M

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

EPO-Internal, WPI Data, PAJ

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	DE 10 91 990 B (UNIVERSAL OIL PRODUCTS COMPANY) 3. November 1960 (1960-11-03) Ansprüche 1-3; Abbildungen 2,3 -----	1, 14
A	US 3 241 293 A (W.C.PFEFFERLE) 22. März 1966 (1966-03-22) Beispiel 1 -----	1
A	US 5 645 626 A (D.J.EDLUND ET AL) 8. Juli 1997 (1997-07-08) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 7-43 -----	1, 14
A,P	EP 1 279 431 A (TOYOTA JIDOSHA KK) 29. Januar 2003 (2003-01-29) Ansprüche; Abbildungen ----- -/--	1, 14



Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen



Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

\*A\* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

\*E\* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

\*L\* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

\*O\* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

\*P\* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

\*T\* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

\*X\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

\*Y\* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

\*Z\* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

25. Februar 2004

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

03/03/2004

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Cordero Alvarez, M

## C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANSICHTGEHENE UNTERLAGEN

Kategorie <sup>o</sup>	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	WO 01/70376 A (IDATECH) 27. September 2001 (2001-09-27) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche; Abbildungen -----	1,14



# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

Patent E 03/02568

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 1091990	B	03-11-1960	CH 391670 A 15-05-1965
		DE 1257756 B 04-01-1968	
		FR 78630 E 17-08-1962	
		FR 1202215 A 08-01-1960	
		GB 833837 A 04-05-1960	
		NL 134067 C	
		NL 257410 A	
		US 2824620 A 25-02-1958	
		US 2958391 A 01-11-1960	
US 3241293	A	22-03-1966	DE 1252185 B 15-03-1967
		GB 1061583 A	
US 5645626	A	08-07-1997	US 5498278 A 12-03-1996
		US 5393325 A 28-02-1995	
		CA 2193776 A1 12-07-1997	
		EP 0783919 A1 16-07-1997	
		JP 9248416 A 22-09-1997	
		CA 2162084 A1 20-06-1996	
		EP 0718031 A1 26-06-1996	
		JP 8215547 A 27-08-1996	
		AU 7766494 A 23-02-1995	
		CA 2135153 A1 09-05-1995	
		EP 0652042 A1 10-05-1995	
		JP 7185277 A 25-07-1995	
		AU 3701693 A 18-11-1993	
		BR 9301821 A 30-11-1993	
		CA 2094198 A1 16-11-1993	
		EP 0570185 A2 18-11-1993	
		JP 6007625 A 18-01-1994	
		AT 140164 T 15-07-1996	
		AU 636049 B2 08-04-1993	
		AU 8173591 A 27-02-1992	
		BR 9103432 A 19-05-1992	
		CA 2048849 A1 11-02-1992	
		DE 69120740 D1 14-08-1996	
		DE 69120740 T2 07-11-1996	
		EP 0470822 A1 12-02-1992	
		JP 4227035 A 17-08-1992	
		NO 913090 A 11-02-1992	
		US 5139541 A 18-08-1992	
		US 5217506 A 08-06-1993	
		US 5259870 A 09-11-1993	
EP 1279431	A	29-01-2003	JP 2003034506 A 07-02-2003
			JP 2003095617 A 03-04-2003
			EP 1279431 A1 29-01-2003
			US 2003015096 A1 23-01-2003
WO 0170376	A	27-09-2001	US 6319306 B1 20-11-2001
			AU 5758501 A 03-10-2001
			BR 0109461 A 03-06-2003
			CA 2393475 A1 27-09-2001
			EP 1272259 A1 08-01-2003
			JP 2004502622 T 29-01-2004
			TW 495373 B 21-07-2002
			US 2002041837 A1 11-04-2002
			WO 0170376 A1 27-09-2001

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 03/02568

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
WO 0170376 A		US 2003056652 A1	27-03-2003
		US 6547858 B1	15-04-2003
		US 2002083829 A1	04-07-2002
		US 2003164094 A1	04-09-2003
		US 2003205138 A1	06-11-2003
<hr/>			